

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(51)

Int. Cl..

H 07 27/12

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

DEUTSCHES PATENTAMT



(52)

Deutsche Kl.: 21 k9, 27/12

(10)

(11)

Offenlegungsschrift 1 902 481

(21)

Aktenzeichen: P 19 02 481.8

(22)

Anmeldetag: 18. Januar 1969

(43)

Offenlegungstag: 13. August 1970

Ausstellungspriorität: —

(30)

Unionspriorität

(32)

Datum: —

(33)

Land: —

(31)

Aktenzeichen: —

(54)

Bezeichnung: Verfahren zur Regelung der Alkoholkonzentration im Elektrolyten von Brennstoffelementen und dafür geeignete Vorrichtungen

(61)

Zusatz zu: —

(62)

Ausscheidung aus: —

(71)

Anmelder: Varta AG, 6000 Frankfurt

Vertreter: —

(72)

Als Erfinder benannt: Girlich, Dipl.-Ing. Klaus, 6233 Kelkheim

(56)

Rechercheantrag gemäß § 28 a PatG ist gestellt

Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht zu ziehende Druckschriften:

FR-PS 1 532 246

US-PS 3 389 018

US-PS 3 343 991

US-PS 3 390 015

1 902 481

ORIGINAL INSPECTED

Reg.-Nr. EDUP 140

Frankfurt/Main, den 14.1.1969
PT - Fnn/HBn.

VARTA AKTIENGESELLSCHAFT
6 Frankfurt/Main, Neue Mainzer Straße 54

Verfahren zur Regelung der Alkoholkonzentration im
Elektrolyten von Brennstoffelementen und dafür ge-
eignete Vorrichtungen

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Re-
gelung der Alkoholkonzentration im Elektrolyten von in
Betrieb befindlichen Brennstoffelementen.

Bei mit Alkohol als Brennstoff betriebenen Elementen
wird während der Stromerzeugung der im Elektrolyt gelöste
Alkohol verbraucht, so daß sich die Alkoholkonzentration
ständig verringert.

Es ergab sich daher die Aufgabe, ein Verfahren zu finden,
mit dem auf eine einfache und betriebssichere Weise der
Zeitpunkt ermittelt werden kann, an dem die Alkoholkon-
zentration unter einen vorgegebenen Wert absinkt, bzw.
an dem nach Zugabe von Alkohol eine Mindestkonzentration

009833/1682

wieder überschritten ist. Vorzugsweise soll dieses Verfahren geeignet sein zur von der Alkoholkonzentration abhängigen Erzeugung eines elektrischen Signals, das zur Steuerung einer geeigneten, an sich bekannten Regelvorrichtung für die Zugabe von Alkohol verwendet werden kann.

Diese Aufgabe wird durch das erfindungsgemäße Verfahren zur Regelung der Alkoholkonzentration im Elektrolyten von Brennstoffelementen gelöst, indem man die Oberflächenspannung als Meßgröße verwendet; ein Teil der alkoholhaltigen Elektrolytflüssigkeit wird einem oder mehreren Kapillarrohren oder -spalten zugeführt und der Kapillardruck überprüft.

Bei einer besonders bewährten Ausbildung des erfindungsgemäßen Verfahrens wird dem Elektrolytraum des Brennstoffelementes oder dem Elektrolytspeicher in vorgegebenen Zeitabständen eine Meßprobe entnommen, die Kapillare mit dieser Lösung gespült und anschließend der Kapillardruck überprüft.

Bei einer vorteilhaften Vorrichtung zur Regelung des Kapillardrucks nach dem erfindungsgemäßen Verfahren ist ein Kapillarrohr am oberen Ende mit der Elektrolytzuleitung verbunden und taucht am unteren Ende in ein Überlaufgefäß ein. Außerhalb und/oder innerhalb des Kapillarrohres

009833/1682

sind zwei Elektroden angeordnet, welche mit einer an sich bekannten Wechselstrommeßanordnung verbunden sind. Wenn die mit Abstand voneinander angeordneten Elektroden nicht durch die Flüssigkeitssäule in der Kapillarröhre oder dem Kapillarspalt überdeckt werden, liegt die Alkoholkonzentration in der Elektrolytflüssigkeit oberhalb der für die Regelung festgelegten Mindestkonzentration. Bei absinkender Alkoholkonzentration nimmt die Oberflächenspannung zu, so daß die Flüssigkeitssäule hochsteigt. Sobald der Meniskus der Flüssigkeitssäule zwischen den beiden Elektroden liegt, wird von der Wechselstrommeßanordnung ein entsprechendes Signal abgegeben, welches nach geeigneter Verstärkung eine Regelvorrichtung zur Auslösung der Zugabe von Alkohol zum Elektrolyten betätigt.

Die Oberflächenspannung einer Elektrolytflüssigkeit, welche beispielsweise Kalilauge und geringe Mengen Kaliumkarbonat enthält, ist im Wesentlichen von der Alkoholkonzentration abhängig. Die Steighöhe der Flüssigkeit in den Kapillaren ist daher eine zuverlässige Meßgröße für die Regelung der Alkoholkonzentration. Es besteht eine geringe Abhängigkeit von der Temperatur, welche jedoch beim Betrieb eines Brennstoffes vernachlässigt werden kann.

009833/1682

Die Figur 1 zeigt eine mögliche Ausführungsform der erfindungsgemäßen Vorrichtung; die an sich bekannten Dosiervorrichtungen zur periodischen Entnahme von Elektrolytflüssigkeit aus der Batterie und zur Zugabe frischen Alkohols wurden zwecks Vereinfachung in den Figuren weggelassen. Mit Hilfe der Dosiervorrichtung wird zunächst ein Teil der Elektrolytflüssigkeit am oberen Ende der Kapillare 1 eingeführt. Dadurch werden die Reste der Elektrolytflüssigkeit von der vorhergehenden Messung in das Überlaufgefäß 3 gespült. Anschließend wird am oberen Ende der Kapillare 1 wieder eine Verbindung mit der Atmosphäre hergestellt, wonach sich der Meniskus 4 der Flüssigkeitssäule in der Kapillare 1 in einer Höhe einstellt, die der Alkoholkonzentration entspricht.

Außen an der Kapillare sind die beiden Ringelektroden 2 angeordnet, welche mit einer durch Wechselstrom betriebenen Meßvorrichtung verbunden sind. Die Stellung des Meniskus 4 in der Kapillare 1 kann durch die in einer vorgegebenen Höhe angebrachten beiden Ringelektroden 2 kapazitiv gemessen werden. Wenn sich der Meniskus 4 zwischen den beiden Ringelektroden 2 einstellt, wird durch ein entsprechendes Signal der Meßvorrichtung die Regelvorrichtung betätigt.

Die Figur 2 zeigt eine ähnliche Vorrichtung. Der Unterschied besteht lediglich darin, daß die beiden Ring-

elektroden 5 im Innern des Kapillarrohres 1 angeordnet sind, so daß die Messung der Stellung des Meniskus 4 und damit der Oberflächenspannung der Elektrolytflüssigkeit durch eine ohm'sche Messung des Wechselstromwiderstandes der Flüssigkeit zwischen den beiden Elektroden 5 erfolgt.

In der Figur 3 ist eine Vorrichtung dargestellt, mit der die Länge der Flüssigkeitssäule zwischen der außerhalb der Kapillare angeordneten Rohrelektrode 6 und der in der Mitte der Kapillare 1 angeordneten Mittelelektrode 7 kontinuierlich durch Kapazitätsmessung zu ermitteln ist.

Die Figur 4 zeigt eine ähnliche Anordnung wie die Figur 3 mit dem Unterschied, daß die Rohrelektrode 8 zusammen mit der Mittelelektrode 9 im Innern der Kapillare 1 angeordnet ist und auf diese Weise eine ohm'sche Messung der Länge der Flüssigkeitssäule zwischen den beiden Elektroden 8 und 9 ermöglicht wird.

In der Figur 5 ist eine Anordnung dargestellt, mit der ebenfalls festgestellt werden kann, ob sich der Meniskus 4 der Flüssigkeitssäule in der Kapillare 1 oberhalb einer bestimmten Höhe eingestellt hat. In diesem Falle verändert sich die Lichtmenge, welche von der mit einem Linsensystem versehenen Lampe 10 auf die Fotozelle 11 fällt.

Zur Bestimmung der Oberflächenspannung bei dem erfindungsgemäßen Verfahren können auch die bekannten Kapillarelektrometeranordnungen verwendet werden.

Das Verfahren und die Vorrichtungen ermöglichen eine sehr einfache und dennoch voll ausreichende Bestimmung der Konzentration ein- und mehrwertiger Alkohole, beispielsweise Methanol, Äthanol und Glykol, in der Elektrolytflüssigkeit von Brennstoffelementen.

- 4 -

Patentansprüche

1. Verfahren zur Regelung der Alkoholkonzentration im Elektrolyten von mit flüssigen Brennstoffen betriebenen Brennstoffelementen, dadurch gekennzeichnet, daß unter Verwendung der Oberflächenspannung als Meßgröße ein Teil der alkoholhaltigen Elektrolytflüssigkeit einem oder mehreren Kapillarrohren oder -spalten zugeführt und durch einen vorgegebenen Grenzwert des Kapillardrucks die Aufkonzentration des Alkohols ausgelöst wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß ein Teil der Elektrolytflüssigkeit des Brennstoffelementes in vorgegebenen Zeitabständen entnommen und den Kapillaren zugeführt wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß Elektrolytflüssigkeit kontinuierlich einem an sich bekannten Kapilarelektrometer zugeführt wird.
4. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Kapillare an ihrem unteren Ende in ein Überlaufgefäß eintaucht und an oder in der Kapillare zwei Elektroden zur Überwachung der Steighöhe der Flüssigkeitssäule in der Kapillare angeordnet sind.

009833/1682

Fig. 1

- 9 -

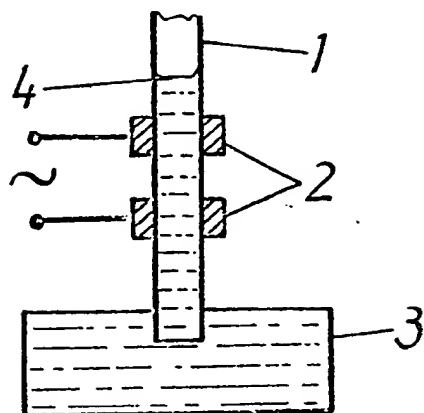


Fig. 2

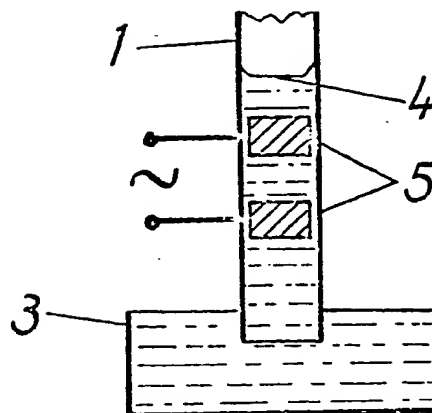


Fig. 3

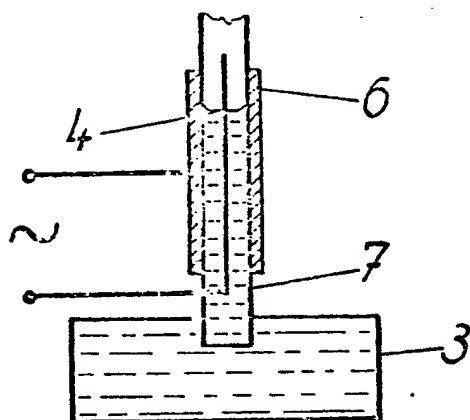


Fig. 4

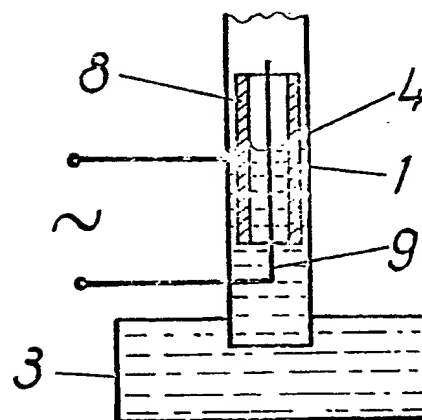
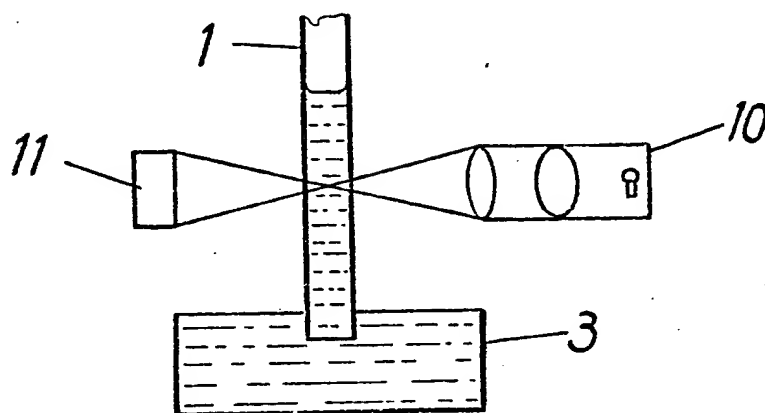


Fig. 5



009833/1682